

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **11016584 A**

(43) Date of publication of application: **22.01.99**

(51) Int. Cl.

H01M 8/02
H01M 8/10

(21) Application number: **09168211**

(22) Date of filing: **25.06.97**

(71) Applicant: **SANYO ELECTRIC CO LTD**

(72) Inventor: **ISONO TAKAHIRO**
AKIYAMA YUKINORI
MIYAKE YASUO

(54) CELL FOR SOLID HIGH POLYMER TYPE FUEL CELL AND ITS MANUFACTURE

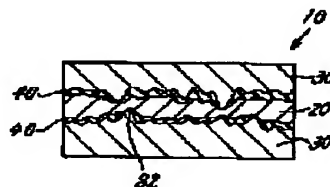
sheet-like electrolyte material one over another followed by heating and pressurizing.

(57) Abstract:

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

PROBLEM TO BE SOLVED: To attain the thinning of a solid electrolyte film while avoiding the generation of pinhole and provide a cell operable under non-humidification by forming an electrolyte layer consisting of an electrolyte material between a catalyst layer and the solid electrolyte film.

SOLUTION: A cell for solid polymer type fuel cell 10 comprises an electrolyte layer 40 consisting of an electrolyte material, which is formed between a catalyst layer 30 and a solid electrolyte film 20. The electrolyte layer 40 is desirably formed of the same component as the solid electrolyte film 20, and the thickness of the electrolyte layer 40 is desirably thinner than the solid electrolyte film 20. The electrolyte layer 40 is formed on the catalyst layer 40 on the connecting side with the solid electrolyte film 20. The total thickness of the solid electrolyte film 20 and the electrolyte layer 40 connected to one surface or both surfaces of the solid electrolyte film 20 is desirably set to 5-50 μm . The electrolyte layer 40 can be formed by arranging the catalyst layer 30 and the



固体高分子型燃料電池用セルを提供することである。
〔0007〕

〔要旨を解決するための手段〕上記問題を解決するため
に、本発明の固体高分子型燃料電池用セル(10)は、触
媒層(30)と固体電解質膜(20)との間に、電解質材料から
なる電解質膜(40)を形成したものである。電解質膜(40)
は、固体電解質膜(20)と同じ成分から形成することが望
ましく、電解質膜(40)の厚さは、固体電解質膜(20)より
薄くすることが望ましい。電解質膜(40)は、固体電解
質膜(20)との接合部の触媒層(30)の面に形成される。電
解質膜(40)を形成する方法として、触媒層(30)と、シー
ト状の電解質材料を重ねて配置した後、加熱と加圧を行
う方法が挙げることができる。また、電解質膜(40)を
形成する別の方法として、触媒層(30)の表面に電解質材
料をブラズマ重合させる方法が挙げることができる。電
解質膜(40)を触媒層(30)に形成した後、触媒層(30)上の
電解質膜(40)と固体電解質膜(20)とを加熱と加圧によっ
て接合させて、固体高分子型燃料電池用セル(10)が作
製される。

〔0008〕

〔作用及び効果〕触媒層(30)に、予め電解質膜(40)を形
成し、電解質材料、導電性材料及び触媒材料が同時に存
在する界面を形成しているため、電解質膜(40)の形成さ
れた触媒層(30)と、固体電解質膜(20)を接合するときに
は、弱い加圧条件で固体電解質膜(20)を接合させること
ができ、固体電解質膜(20)が触媒層(30)によって突き破
られることがない。つまり、電解質材料、導電性材料及
び触媒材料からなる界面を多数形成しつつ、固体電解質
膜(20)の損傷を防ぐことができる。固体電解質膜(20)が
損傷を受けることがないから、固体電解質膜(20)を再損
傷化しても、ガスのリークや電気的ショートが生じな
い。また、無加圧雰囲気下の作動も可能となる。仮に、固
体電解質膜(20)又は電解質膜(40)が損傷を受けても、固
体電解質膜(20)の上を触媒層(30)側の電解質膜(40)が覆
っており、固体電解質膜(20)と電解質膜(40)の相対位置
とは一致しないから、ピンホールの貫通は起こらない。
〔0009〕

〔発明の実施の形態〕本発明の固体高分子型燃料電池

用セルの作製方法の一実施形態について説明する。ま
ず、以下の固体電解質膜、触媒層及び電解質膜を準備す
る。

固体電解質膜

固体電解質膜は、パーフルオロカーボン骨格、ス
チレン-ジビニルベンゼン骨格などの電解質材料
から形成することができる。固体電解質膜の厚さは、5
 μm 〜40 μm とすることが望ましい。また、固体電解
質膜の大きさは、作製される固体高分子型燃料電池の
性能に合わせ適宜選択することができ、なお、無加
圧で固体高分子型燃料電池を作動させる場合には、電

解質材料の厚さを薄くする必要があるため、固体電解質
膜と固体電解質膜の片面又は両面に接合される電解質膜
との合計厚さを5 μm 以上50 μm 以下とすることが望
ましい。

触媒層

触媒層は、平均粒径10 μm 〜70 μm のカーボンなど
の導電性材料に、平均粒径10 μm 〜300 \AA のP
t、Ru(リネウム)などの触媒材料を担持させた粉末
を、結着剤などと共に焼結、圧延等によって形成した多
孔質の薄板によって形成することができ、触媒層の厚
さは、10 μm 〜100 μm 程度が適当であり、接合さ
れる固体電解質膜より若干小さい大きさに加工される。

電解質膜

電解質膜は、固体電解質膜と同じ成分の電解質材料から
形成することが望ましい。触媒層に電解質膜をホットプ
レスなどの加熱及び加圧によって形成する場合に、電
解質材料を予め厚さ1 μm 〜10 μm のシート状に形成
しておくことが望ましい。

〔0010〕触媒層への電解質膜の形成は、触媒層の片
側面にシート状の電解質材料を重ねて、加熱及び加圧を
施すことによって接合することができる。接合方法とし
て、ホットプレスを適用することができ、なお、電解
質膜は、以下の実施例にて説明するのとおり、ブラズマ重
合によっても形成することができ、触媒層と電解質材
料の接合は、電解質材料のガラス転移温度以上、分解温
度未満の温度下にて、30 kg/cm^2 以上500 kg/cm^2
以下の圧力を加えることによって実施することができ、触
媒層(30)と電解質膜(40)との接合部分を示す拡大図であ
る。図示のとおり、触媒粉末(32)が担持された導電性粉
末(34)の間に、電解質材料(42)が侵入してネットワーク
化されていることがわかる。

〔0011〕電解質膜(40)が形成された一対の触媒層(3
0)と、固体電解質膜(20)について、触媒層(30)の電解質
膜側が固体電解質膜(20)と対向するように間に挟んで、
電解質膜(40)と固体電解質膜(20)を、加熱及び加圧を施
し接合する(図1参照)。接合方法として、ホットプレ
スをかけることができる。加熱及び加圧条件は、電解質材
料のガラス転移温度以上、分解温度未満の温度下にて、
5 kg/cm^2 以上30 kg/cm^2 以下の圧力とするとこ
ろができる。電解質膜と固体電解質膜は、作動中に割が
れることがないように接合するだけでなく、上記触媒層
と電解質膜との接合のようにネットワーク化を行なわな
くてよいので、電解質膜の形成に要した加圧条件より
も、弱い加圧条件で固体電解質膜を接合させることがで
きる。

〔0012〕上記のように、触媒層の表面に電解質膜を
形成し、電解質膜を固体電解質膜と接合することによ
って固体高分子型燃料電池用のセルが作製される。な

お、仮に触媒層と電解質膜との接合時に、電解質膜(40)
が、触媒層(30)の表面の凹凸によって一部損傷(62)を受
けたとしても、後工程である固体電解質膜(20)との接合
時の加圧条件は弱いいため、固体電解質膜(20)は損傷を受
けることがない。

〔0013〕

〔実施例〕以下の要領にて触媒層を作製し、得られた触
媒層の表面に電解質膜を形成し、電解質膜の上に固体電
解質膜と接合して固体高分子型燃料電池用セル(10)を作
製する。また、比較のために、電解質膜を
形成しない触媒層に固体電解質膜と接合してセル(比
較セル)を作製した。作製されたセルを用いてセル試験
を実施した。

〔0014〕まず、触媒層の作製方法について説明す
る。

触媒層

Pt担持カーボンを結着剤PTFE(ポリテトラフルオ
ロエチレン)及び造孔剤としてCaCO₃を混合、ろ過し
た後、圧延シート状に成形した。ついで、1N-HN
O₂中に浸漬して造孔剤を除去し、多孔性のシートとし
て、面積25 cm^2 、厚さ50 μm の触媒層を形成し
た。以下、触媒層は、すべての作製方法により得られ
たものを使用した。

〔0015〕得られた触媒層を用いて、以下のセル(発
明セル1〜4及び比較セル1、2)を作製した。

発明セル1の作製

得られた触媒層の表面にシート状の電解質材料(パー
フルオロカーボン系ポリイミド)を、デュポン社製 Nafion
膜、厚さ：5 μm を温度180℃、圧力300 kg/cm^2
の条件下でホットプレスを施して接合し、電解質
膜を準備した。接合部分を観察したところ、電解質膜(4
0)は、厚さ1 μm 〜5 μm の不均一なシート状となつて
触媒層(30)の内部に侵入していた(図2参照)。電解質膜を
形成した1対の触媒層の間に、電解質膜と同じ電解質材
料からなる厚さ40 μm の固体電解質膜を挟んで、温度
150℃、圧力10 kg/cm^2 の条件下でホットプレ
スし、電解質膜と固体電解質膜を接合して発明セル1を
作製した。

発明セル2の作製

触媒層に接合する電解質膜の厚さを10 μm としたこと
以外は、作製方法は発明セル1と同じである。

発明セル3の作製

触媒層に接合する電解質膜の厚さを20 μm としたこと
以外は、作製方法は発明セル1と同じである。

発明セル4の作製

ブラズマ重合によって、触媒層の表面に電解質膜を形成
した。ブラズマ重合装置(90)は、図3に示すごとく、真
空ポンプ(92)に接続されたチャンバー(93)の内部に、一
方が高周波電気発生器(96)に接続され、他方がアースさ

れた一対の電極板(94)(95)を配置したものであり、チャ
ンバー(93)に流通して原料投入管(97)が接続されてい
る。電極板(94)(95)の間に触媒膜(30)を置き、真空ポン
プ(92)によりチャンバー(93)内を脱気し、高周波電気発
生器(96)によって電極板(94)(95)間に5Wの電力を印加
しながら、原料投入管(97)から電解質材料(42)として、
ヘキサフルオロプロピレンとトリフルオロメタンスルホ
ン酸を供給した。これにより、触媒膜(30)の表面に厚さ
約1.2 μm の電解質膜が形成された。電解質膜の形成
された1対の触媒膜の間に、発明セル1と同様の方法で固
体電解質膜を接合した。

〔0016〕比較セル1の作製

触媒層に電解質膜を形成しないまま、発明セル1と同じ
ホットプレス条件(温度150℃、圧力10 kg/cm^2)
で厚さ40 μm の固体電解質膜を接合した。

比較セル2の作製

固体電解質膜のホットプレス条件を温度150℃、圧力
300 kg/cm^2 とした以外、作製方法は比較セル1
と同じである。

〔0017〕得られた発明セル1〜4と、比較セル1、
2と、それぞれ排水処理を施したカーボンペーパーで挟
み、セル試験を行った。試験は、以下に示す0.5V測
定と、電流密度500 mA/cm^2 でのセル電圧の測定
であつて、試験条件は、電池温度80℃、燃料加湿温度
80℃、酸化剤無加湿であり、燃料ガスとしてH₂、酸
化剤ガスとして空気をを用いた。なお、燃料利用率は50
%、酸化剤利用率は20%とした。

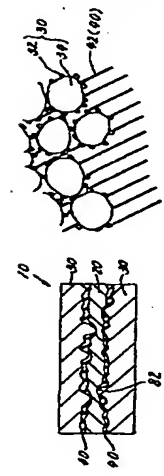
〔0018〕負荷を加えていない状態で、ガスのみを供
給したときの各セルの電圧(開回路電圧:0.5V)を測定
したところ、図4に示すように、発明セル1〜4及び比
較セル1は、何れも高い値を示しているが、比較セル2
は低い値となつていて、これは、触媒膜に固体電解質膜
を形成したときの加圧条件が低かつたため、固体電解質
膜にピンホールなどの損傷が生じて、ガスのリークまた
は電気的なショートが発生しているためであると考えら
れる。一方、発明セル1〜4及び比較セル1について
は、固体電解質膜には損傷はないと考えられる。

〔0019〕つぎに、電流密度500 mA/cm^2 での
セル電圧を測定したところ、図4に示すように、発明セ
ル1〜4は、比較セル1、2に比べて高いセル電圧を示
していることがわかる。比較セル1、2のセル電圧は、
発明セル1〜4に比べて低いのは、比較セル2は前述の
とおり固体電解質膜が損傷を受けているためであり、比
較セル1は固体電解質膜に損傷はないけれども、固体電
解質膜と触媒層との加圧条件が弱いから、電解質材料と
触媒層のネットワーク化が十分に行なわれていたため
である。発明セル1〜4が、比較セル1、2に比べて高
いセル電圧を示しているのは、発明セルは、予め触媒層
と電解質膜を接合しており、電解質材料と触媒層とのネ
ットワーク化が十分に行なわれているためである。また、

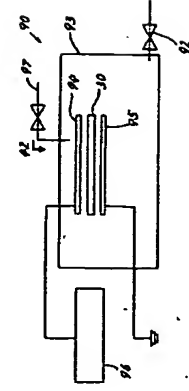
電解質層を形成した触媒層と固体電解質膜との接合は、弱い加圧条件で実施しており、固体電解質膜が損傷を受けることがないためである。なお、発明セル3は、発明セル1、2及び4に比べてセル圧が低く、電解質材料の厚さが厚くなり、酸化剤無加圧運転が困難となっていることを示している。つまり、無加圧運転を行なう場合には、電解質層と固体電解質膜との合計厚さは、50 μ mより薄くすることが望ましいことがわかる。

【図面の簡単な説明】
 (図1) 本発明の固体高分子型燃料電池セルを示す断面図である。

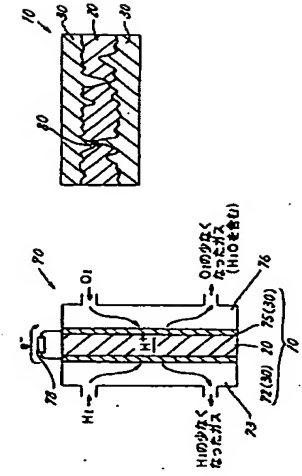
【図1】



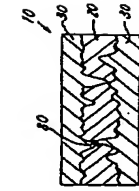
【図3】



【図5】



【図6】



【図2】 触媒層と電解質膜との接合部の拡大図である。
 【図3】 プラズマ重合装置の説明図である。
 【図4】 単セル試験の結果を示すグラフである。
 【図5】 固体高分子型燃料電池の構成を示す概略図である。
 【図6】 従来の固体高分子型燃料電池用セルを示す断面図である。

【符号の説明】

- (10) 固体高分子型燃料電池用セル
- (20) 固体電解質膜
- (30) 触媒層
- (40) 電解質層

【図4】

